

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-217611

(43)Date of publication of application : 31.07.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 2002-229203

(71)Applicant : NTN CORP

(22)Date of filing : 06.08.2002

(72)Inventor : MURAMATSU KATSUTOSHI
SHIMAZU EIICHIRO

(30)Priority

Priority number : 2001352668

Priority date : 19.11.2001

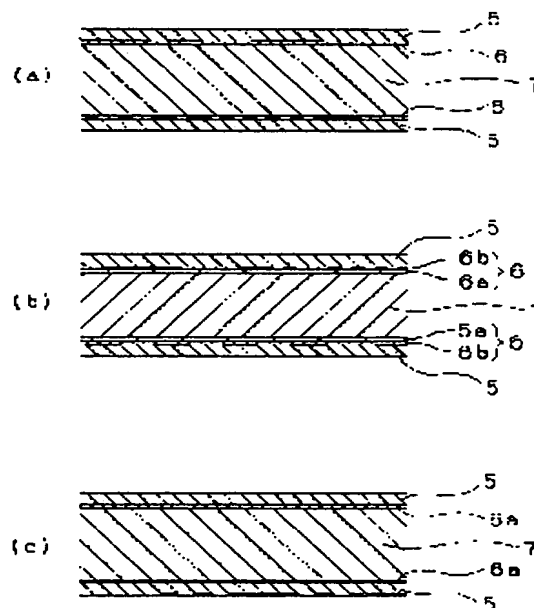
Priority country : JP

(54) SEPARATOR FOR FUEL CELL, AND FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To achieve excellent mechanical strength, corrosion resistance and electric conductivity, and to reduce the manufacturing cost.

SOLUTION: This separator 1 for a fuel cell is formed of a laminated body comprising graphite material 5, a thin film layer 6, metal material 7, a thin film layer 6, and graphite material 5 laminated in this order. The thin film layer 6 for a fuel cell is formed of an adhesion layer comprising a resin thin layer. This separator 1 is obtained by forming a close contact layers comprising the thin film layers 6 of resin on both surfaces of a metal plate as the metal material 7, and directly compression-molding graphite powder on them.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

31.03.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2003-217611
(P2003-217611A)

(43) 公開日 平成15年7月31日 (2003.7.31)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームト [*] (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 5 H 0 2 6
			R
			Y
8/10		8/10	

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2002-229203 (P2002-229203)
(22) 出願日 平成14年8月6日 (2002.8.6)
(31) 優先権主張番号 特願2001-352668 (P2001-352668)
(32) 優先日 平成13年11月19日 (2001.11.19)
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

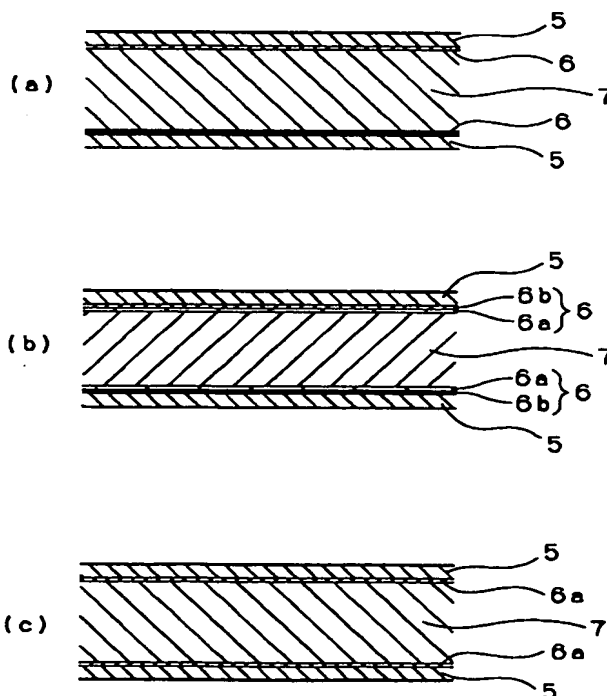
(71) 出願人 000102692
NTN株式会社
大阪府大阪市西区京町堀1丁目3番17号
(72) 発明者 村松 勝利
三重県桑名市大字東方字尾弓田3066 NTN
株式会社内
(72) 発明者 島津 英一郎
三重県桑名市大字東方字尾弓田3066 NTN
株式会社内
(74) 代理人 100100251
弁理士 和気 操
Fターム (参考) 5H026 AA06 BB02 BB04 BB06 CC03
CX04 EE02 EE06 EE18

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータおよび燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 機械的強度、耐食性および電気伝導性に優れ、製造コストを下げる。

【解決手段】 燃料電池用セパレータ1は、黒鉛材5、薄膜層6、金属材7、薄膜層6、黒鉛材5とが順に積層された積層体で形成され、薄膜層6は、樹脂薄層からなる密着層で形成されている。また、この燃料電池用セパレータ1は、金属材7である金属板両表面に樹脂薄層6からなる密着層を形成し、その上に黒鉛粉末を直接圧縮成形する方法で得られる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属材と黒鉛材との積層体からなる燃料電池用セバレータであって、

前記金属材と前記黒鉛材とは、両者間を電氣的に導通して、かつ相互に密着させる薄膜層を介して積層されてなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項2】 前記薄膜層は、前記金属材表面に形成された薄膜層であることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項3】 前記薄膜層が樹脂層であることを特徴とする請求項1または請求項2記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項4】 前記樹脂層が溶媒に溶解するフッ素樹脂の層であることを特徴とする請求項3記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項5】 前記薄膜層が樹脂層と導電層との複合層であることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項6】 前記金属材の両主表面に前記黒鉛材が前記薄膜層を介して密着されてなることを特徴とする請求項1記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項7】 第1の黒鉛材と該黒鉛材を挟んで2枚の第2の黒鉛材を積層する3層の黒鉛材積層体からなる燃料電池用セバレータであって、前記第1および第2の黒鉛材が膨張黒鉛材であり、前記2枚の第2の黒鉛材にガス流路が該黒鉛材をくり貫いて形成されてなることを特徴とする燃料電池用セバレータ。

【請求項8】 前記第1の黒鉛材を貫通する貫通孔が前記第2の黒鉛材のガス流路端に接する位置に形成されてなることを特徴とする請求項7記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項9】 前記ガス流路または前記貫通孔が圧縮成形または機械加工により形成されてなることを特徴とする請求項7または請求項8記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項10】 前記第1の黒鉛材と第2の黒鉛材とは、両者間を電氣的に導通して、かつ相互に密着させる樹脂薄膜層を介して積層されてなることを特徴とする請求項7記載の燃料電池用セバレータ。

【請求項11】 金属材表面に薄膜層を形成する工程と、前記薄膜層が形成された金属材表面に黒鉛粉末を圧縮成形する工程とを備えてなることを特徴とする燃料電池用セバレータの製造方法。

【請求項12】 燃料電池が固体高分子型燃料電池であり、該燃料電池に用いられるセバレータが請求項1ないし請求項10のいずれか一項記載の燃料電池用セバレータであることを特徴とする燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池用セバ

レータ、その製造方法および燃料電池に関し、特に固体高分子型燃料電池用セバレータに関する。

【0002】

【従来の技術】 燃料（還元剤）と酸素（酸化剤）とを外部から連続的に供給して電気エネルギーを取り出す燃料電池は、発電効率に優れ、化石燃料を用いることなく発電ができ、排出ガスも水のみであるため、地球環境に優しいエネルギー源として開発が進められている。特に約80℃程度の低温で作動する割には比較的大電流を放電できる固体高分子型燃料電池は家庭用や電気自動車などの電源として注目されている。固体高分子型燃料電池は、高分子膜の両側にアノードおよびカソードを配して膜／電極接合体を形成し、この接合体の両外側に燃料となる水素を供給するアノード側流路基板および酸素を供給するカソード側流路基板を配して単位セルを構成し、これら単位セル同士がセバレータを介して積層されている。あるいは、セバレータが流路基板を兼用して積層されている。セバレータは厚さ2mm前後の板状で、その両面にガス流路となる溝が形成されている。通常、単位セルで発生する電圧は0.7V程度であるため、複数の単位セルを直列に積層して所望の電圧を得ている。

【0003】 セバレータ材は100S/cm程度の導電性、ガス不透過性、耐食性が求められるため、これらの特性を満足する金属や黒鉛材などが用いられている。金属材料を使用したものとしては、ステンレス鋼などの耐食性向上（例えば特開2000-239806）や金属材料に耐食被膜を形成する方法（例えば特開2000-323531）が開示されている。また、貴金属をコーティングする方法（例えば特開2001-96538）やカーボン、樹脂等の耐食被膜を形成する方法（例えば特開2001-76740）が知られている。一方、黒鉛や樹脂材料を使用したものとしては、黒鉛ブロックを切削して流路を形成したセバレータ、膨張黒鉛シート等を高圧力で成形したセバレータ等が知られており、また、樹脂材料を用いた燃料電池用セバレータとしては、特定の粒子径の膨張黒鉛粉末を熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂に分散させた燃料電池用セバレータ（国際公開番号W097/02612）、開環重合により硬化したフェノール樹脂硬化物中に膨張黒鉛粉末等の炭素材料が分散している燃料電池用セバレータ（特開平11-354135等）が知られている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、金属材料の耐食性向上や耐食被膜を形成する方法は、溶出金属イオンによる電極担持触媒の被毒や表面の不動態化による導電性の経時劣化が避けられないという問題がある。貴金属やカーボン、樹脂等の耐食被膜を形成する方法は、ピンホールを生じない被膜の形成が困難であったり、コーティング材料が高価であったりするため製造コストが高くなる問題がある。黒鉛ブロックを切削して流

路を形成したり、樹脂材料を用いたりしたセバレータは、導電性、ガス不透過性、耐酸性、耐腐食性、機械的強度等のセバレータ特性が十分に得られないことや原料が高価であるため製造コストが高くなる問題がある。

【0005】また、成形性が改良された樹脂組成物であっても、成形で溝を形成しようとする、金型内での圧力分布が不均一なため溝部にクラックが発生したり、セバレータ板にソリが発生するという問題がある。

【0006】本発明はこのような問題に対処するためになされたもので、機械的強度、耐食性および電気伝導性に優れ、セバレータ板を効率よく製造でき、製造コストを下げる事ができる燃料電池用セバレータ、その製造方法およびそのセバレータを用いた燃料電池の提供を目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明の燃料電池用セバレータは、金属材料と黒鉛材との積層体から構成され、上記金属材料と上記黒鉛材とは、両者間を電氣的に導通して、かつ相互に密着させる薄膜層を介して積層されることを特徴とする。ここで、電氣的に導通するとは、体積固有抵抗（以下、抵抗率という）が $1 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下であることをいう。また、上記薄膜層は、上記金属材料表面に形成された薄膜層であることを特徴とする。また、上記薄膜層が樹脂層であることを特徴とし、特に溶媒に溶解するフッ素樹脂の層であることを特徴とする。また、上記薄膜層が樹脂層と導電層との複合層であることを特徴とする。また、燃料電池用セバレータは、上記金属材料の両主表面上に上記黒鉛材が上記薄膜層を介して相互に密着されてなる、すなわち上記金属材料を上記黒鉛材で挟んだ形状であることを特徴とする。

【0008】他の燃料電池用セバレータは、第1の黒鉛材と該黒鉛材を挟んで2枚の第2の黒鉛材を積層する3層の黒鉛材積層体からなる燃料電池用セバレータであって、第1および第2の黒鉛材が膨張化黒鉛材であり、上記2枚の第2の黒鉛材にガス流路が該黒鉛材をくり貫いて形成されてなることを特徴とする。また、第1の黒鉛材を貫通する貫通孔が第2の黒鉛材のガス流路端に接する位置に形成されてなることを特徴とする。また、上記ガス流路または上記貫通孔が圧縮成形または機械加工により形成されてなることを特徴とする。また、第1の黒鉛材と第2の黒鉛材とは、両者間を電氣的に導通して、かつ相互に密着させる樹脂薄膜層を介して積層されてなることを特徴とする。

【0009】本発明の燃料電池用セバレータの製造方法は、金属材料表面に薄膜層を形成する工程と、この薄膜層が形成された金属材料表面に黒鉛粉末を圧縮成形する工程とを備えてなることを特徴とする。

【0010】本発明の燃料電池は、上述した燃料電池用セバレータを用いる固体高分子型燃料電池であることを特徴とする。

【0011】燃料電池用セバレータは、導電性、ガス不透過性、耐酸性、耐腐食性、機械的強度等が要求される。金属材料と黒鉛材とを薄膜層を介して相互に密着することにより、上記特性十分満たすことが見出された。特に、従来、撥水剤や離型剤などに用いられ、フィルム形成能があり、溶媒に溶解するフッ素樹脂を用いると金属材料と黒鉛材との密着性が向上し、電気伝導性が向上することが実験の結果見出された。本発明はかかる知見に基づくものである。また、金属材料の両側を黒鉛材で挟んで圧縮成形することにより、流路基板兼用セバレータなどの流路を一体成形することが容易となる。そのため、複雑な流路溝を有する燃料電池用セバレータであっても高い生産効率で製造できる。

【0012】他の燃料電池用セバレータは、膨張化黒鉛材からなる第1の黒鉛材とガス流路が形成された第2の黒鉛材を積層し、圧着することにより、膨張化黒鉛材層間に接着剤を使用しなくとも十分な密着性が得られる。

【0013】

【発明の実施の形態】燃料電池用セバレータの一例を図1に示す。図1は、固体高分子型燃料電池に用いられる流路基板兼用セバレータ、およびそのセバレータを用いた固体高分子型燃料電池の構造概念を示す斜視図である。固体高分子電解質膜2の表裏両側にアノード3とカソード4とが配置された膜／電極接合体（MEA）と、燃料電池用セバレータ1とを交互に複数枚積層して集合体としてのセルスタックが得られる。燃料電池用セバレータ1、1は、膜／電極接合体（MEA）を両側から挟んで配置される。燃料電池用セバレータ1の表面には、溝部1aが形成され、水素ガスまたは空気の流路が確保される。

【0014】燃料電池用セバレータ1の構造について図2により説明する。図2（a）、（b）、（c）は、図1におけるA部拡大断面図である。図2（a）に示す燃料電池用セバレータ1は、黒鉛材5、薄膜層6、金属材料7、薄膜層6、黒鉛材5とが順に積層された積層体で形成されている。薄膜層6は、樹脂薄膜層から形成されている。この場合、薄膜層6が密着層を形成する。

【0015】図2（b）に示す燃料電池用セバレータ1は、薄膜層6が導電層6aと密着層6bとから構成され、黒鉛材5、導電層6a、密着層6b、金属材料7、密着層6b、導電層6a、黒鉛材5とが順に積層された積層体で形成されている。図2（c）に示す燃料電池用セバレータ1は、薄膜層6が導電層6a単独で構成され、黒鉛材5、導電層6a、金属材料7、導電層6a、黒鉛材5とが順に積層された積層体で形成されている。

【0016】上記図2（a）、（b）、（c）に示す燃料電池用セバレータ1は、金属材料7である金属板両主表面に薄膜層6を形成し、その上に黒鉛粉末を直接圧縮成形して黒鉛材5を形成する方法で得られる。金属板と黒鉛材との間に両者を強固に固着させる薄膜層を形成する

ことで、密着性に優れ、機械的強度、耐食性や電気伝導性に優れた固体高分子型燃料電池用セパレータを製造できる。また金属板と黒鉛材との間に接触抵抗を軽減するための導電層を設けることで電気伝導性をより改善することができる。

【0017】金属材7の種類、大きさ、厚みに関しては特に制約はなく導電性がありセパレータに必要な強度を備えるものであればよい。具体的には鉄、鋼、ステンレス鋼、アルミニウムやこれらの合金等の板材が金属材7として使用できる。

【0018】黒鉛材5は金属板表面を保護する耐食層であると同時に、電気を流す通電層でもあり、膨張黒鉛、膨張化黒鉛、人造黒鉛、天然黒鉛、アセチレンブラックやケッチェンブラックなどの導電性カーボンブラック、コークス粉末、フェノール樹脂やフラン樹脂を炭化させたガラス状カーボン、ピッチを熱処理したメソカーボン黒鉛、炭素繊維等の炭素質粉末あるいはこれらの混合物を使用することができる。燃料電池用セパレータ1の黒鉛材を圧縮成形のみで形成するためには、主として成形性に優れた膨張黒鉛、膨張化黒鉛を使用するのが好ましい。このとき黒鉛材の密度が低いと耐食性能が悪くなるので、 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の成形密度であることが好ましい。また、黒鉛材の厚みは、薄すぎる場合は耐食性が劣ること、厚すぎる場合は導電性が低下してしまうこと、高価な黒鉛原料を大量に使用することから、 $20\mu\text{m}\sim 1500\mu\text{m}$ の範囲であることが好ましく、 $50\mu\text{m}\sim 800\mu\text{m}$ であればさらに好ましい。

【0019】薄膜層6は黒鉛材5と金属材7とを相互に密着させ、また相互に電氣的に導通させることができる材料で形成する。そのような材料としては樹脂材料が挙げられる。樹脂材料であれば固体状、半固体状、液状であってもよい。具体的な樹脂材料としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルペンテン、ポリスチレン、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリフェニレンサルファイド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリカーボネート、ポリオキシメチレン、ポリアミド、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリベンズイミダゾール、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアリレート、テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、エチレン-テトラフルオロエチレン共重合体、エチレン-クロロトリフルオロエチレン共重合体、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体、ポリフッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン、ABS樹脂、AS樹脂、シンジオタクチックポリスチレン、フェノール樹脂、メラミン樹脂、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、尿素樹脂、アルキッド樹脂、フラン樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリカルボジイミド樹脂等が例

示できる。上記樹脂材料は単独あるいは混合物として使用できる。

【0020】上記樹脂材料は絶縁材料であるが、薄膜層6として金属材7表面に形成し、黒鉛材5をその表面に圧縮成形することにより、金属材7と黒鉛材5との間の密着性が向上し、燃料電池用セパレータとして必要な抵抗率が得られる。圧縮成形時に薄膜層が適度な変形や破断をすることで金属材と黒鉛材との接触を起し電気伝導性が得られるものとする。このため、密着層の厚さが薄すぎる場合は金属材と黒鉛材とが密着せず、厚さが厚すぎる場合は金属材と黒鉛材の導通性が劣るので薄膜層の厚さは、 $0.005\mu\text{m}$ 以上 $5\mu\text{m}$ 未満の範囲であることが好ましく、 $1\mu\text{m}$ 以下であればさらに好ましい。

【0021】本発明においては、薄膜層6が $5\mu\text{m}$ 未満の厚さで圧縮成形時の圧縮強度を高めることにより、金属材7と黒鉛材5との間の接着力が向上する。また、接着力の向上とともに、燃料電池用セパレータとして必要な抵抗率である $1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の抵抗率が得られた。このため、密着性の程度は、抵抗率の大きさに判断できる。

【0022】薄膜層6として好適な樹脂材料は、溶媒に溶解するフッ素樹脂である。金属材表面に所定の厚さの薄膜層を塗布により形成できるためである。溶媒に溶解する好ましいフッ素樹脂としては、共重合フッ素樹脂が挙げられる。特にテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体が好ましい。この共重合フッ素樹脂はケトン系またはエステル系溶媒に可溶性で、金属材表面に対する接着性にも優れている。テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン-フッ化ビニリデン共重合体の市販品としては、THV200、THV400、THV500等（住友スリーエム社製商品名）が挙げられる。

【0023】薄膜層6として、導電性樹脂材料も使用できる。例えば、導電性を付与したポリアセチレンやポリアニリン、ポリピロール等のポリフェニレン系樹脂等が挙げられる。この場合、薄膜層の厚さは、 $5\mu\text{m}$ 以上であってもよい。

【0024】薄膜層6は、上記樹脂材料からなる密着層単独でもよいが、さらに導電層を積層した薄膜層であってもよい。導電層を設けることで、さらに電気伝導性が改善される。導電層は金属材の層と黒鉛材の層との接触抵抗を軽減するものであればよく、具体的には金、白金、パラジウム、銀、銅等の貴金属コーティングやITO（インジウム錫複合酸化物）、酸化錫、酸化亜鉛等の導電性酸化物被膜が挙げられる。これら導電層の厚みは、薄すぎる場合は金属材と黒鉛材との接触抵抗の軽減に寄与せず、厚すぎる場合は高価な導電層材料を大量に使用し、成膜時間も長くなるため製造コストの増加につながる。具体的には $1\text{nm} \sim 500\text{nm}$ であることが好ましく、 $2\text{nm} \sim 50\text{nm}$ であればさらに好ましい。

【0025】次に、上記材料を用いた燃料電池用セバレータの製造方法について説明する。

(1) 金属材料となる金属板を準備する。この金属板の表面に必要に応じて導電層を形成する。

(2) 導電層の形成は公知の薄膜形成方法を採用できる。例えば、湿式メッキ法、無電解メッキ法、真空蒸着法、イオンプレーティング法、スパッタリング法等のPVD法、CVD法が挙げられる。

(3) 金属板単独、あるいは表面に導電層が形成された金属板表面に薄膜層を形成する。薄膜形成方法としては、5 μ m未満の厚さを形成できる方法であればよい。例えば、樹脂溶液あるいは樹脂分散液を用いたディッピング法、スピコーティング法、塗布やスプレー噴霧法、また、粉体のプレス成形、真空蒸着法、スパッタリング法等が挙げられる。

(4) 表面に導電層が形成された金属板、表面に導電層および薄膜層が順に形成された金属板、または、表面に薄膜層が形成された金属板表面に、圧縮成形により黒鉛材の層を形成する。圧縮成形の方法としては、油圧プレスやCIP（冷間等方圧成形）を採用できる。

【0026】また、圧縮成形の際に、あらかじめガス流路に相当する形状を有した金型を使用して、流路基板一体型セバレータを成形することもできる。金型の一例を図3および図4に示す。図3および図4は金型の断面図である。図3は、金型ダイ8に保持された上型9と下型10との間に黒鉛材5の粉末、表面に薄膜層6が形成された金属材料7、黒鉛材5の粉末の順に積層して油圧プレス等で型締めを行ない、流路基板一体型セバレータを成形する例である。図4は、型締めを行なう際に、同時に金属板の成形を行なう例である。

【0027】本発明の燃料電池用セバレータは、機械的強度やガス不透過性は金属材料によって、耐食性、耐酸性は表面に形成された黒鉛材によって維持され、金属材料と黒鉛材の密着力は密着性に優れた薄膜層を形成することで十分に保持される。金属材料に黒鉛材が薄く形成された構造であることから電気伝導性に優れる。また、機械的強度、ガス不透過性が高い金属材料を用いることによって、黒鉛単独、樹脂単独系のセバレータに比較して薄型構造にできる。このため、黒鉛単独、樹脂単独系のセバレータと同等以上の性能が得られる。また、接触抵抗を抑制する導電層を形成すれば、さらに電気伝導性の向上が図れる。

【0028】また、金属材料は高価なステンレス鋼等を使用する必要はなく、さらに材料が高価である黒鉛材の層、導電層は厚みが薄いのでその使用量が少ないため、工業生産性に優れる。黒鉛層は単純な圧縮成形で形成されることから、樹脂材料成形時の加熱・冷却が不要でサイクルタイムを短くでき、さらにガス流路に相当する溝部も一回で成形が可能であることから、切削工程等の後加工も不必要である。従って、製造工程を短縮でき製

造性に優れた燃料電池用セバレータが得られる。

【0029】得られた燃料電池用セバレータは金属材料と黒鉛材との複合体であり、導電性、ガス不透過性、耐酸性、耐腐食性、機械的強度に優れ、小型化が可能となる。そのため、このセバレータを用いることにより高性能な固体高分子型燃料電池が得られる。

【0030】金属材料を用いないで、膨張化黒鉛粉末を圧縮成形して得られる燃料電池用セバレータの製造方法について、図5を用いて以下に説明する。図5は燃料電池用セバレータの分解斜視図である。この方法は樹脂成形で流路溝を形成する際に発生するクラックやセバレータ板のソリを防止する方法として好適である。図5に示すように、膨張化黒鉛粉末を圧縮成形して3枚の板状成形体を得る。第2の黒鉛板となる上板11および下板13にはそれぞれ燃料ガスと酸化剤ガス流路となる孔11aおよび13aが形成されている。また、それぞれの流路の端部にガスを供給または流路からガスを排出するための貫通孔11bおよび13bが形成されている。さらに、反対面のガス流路にガスを供給またはガス流路からガスを排出するための貫通孔11cおよび13cがあいているが、この貫通孔11cおよび13cは流路となる孔11aおよび13aに連結せず独立している。第1の黒鉛板となる中板12には上板11および下板13のガス流路にガスを供給またはガス流路からガスを排出するための貫通孔12aがあいている。燃料電池用セバレータは、上板11、中板12および下板13を積み重ね、上下から加圧することにより圧着することによって得られる。その際、上板11および下板13のガス流路孔11aおよび13aには、溝が崩れることを防ぐ目的で、流路形状にあった構造物を挿入しておくことが好ましい。この構造物は加圧治具に一体でもよい。また、板の側面に形状を拘束する構造物を設けることも形状を保つ上で好ましい。ガスの流路は燃料電池の大きさや効率に応じて任意の設計が可能である。例えば、ガスの供給・排出の効率を上げるため、ガス流路の系統を複数にすることもでき、その際には供給・排出穴は複数となる。燃料電池の冷却水の流路を設けることもできる。

【0031】また、上板11、中板12および下板13の積層は相互に電気的に導通して、かつ相互に密着させる樹脂薄膜層を介して積層することができる。また、このセバレータに撥水性を付与するため表面エネルギーの小さな物質を塗布したり、あるいはこれらを膨張化黒鉛粉末に少量（8重量%以下）配合して成形することができる。塗布あるいは添加する物質を変更することで、逆に親水性を付与することもできる。また、膨張化黒鉛の一部を鱗片状黒鉛で置き換えたり、炭素繊維などの充填材で補強することもできる。さらに中板12を耐食性のよい金属で構成したり、あるいは中心部に金属板を配置し、高強度化するなどの構造を採用することもできる。

【0032】

【実施例】実施例1～10および比較例1～4

縦 80mm×幅 50mm×厚さ 1mm の金属（鉄）板に、表1に示す条件で導電層、薄膜層、黒鉛材を形成した。導電層は、真空蒸着法（Au）と、マグネトロンスパッタリング法（ITO）を用いて形成した。薄膜層はケトン系溶媒溶解性のフッ素樹脂であるTHV200P（住友スリーエム社製）をアセトンに溶解し、ディッピング法にて形成した。薄膜層の膜厚は、ディッピング液濃度、引き上げ速度等で制御した。黒鉛材は膨張化黒鉛粉末KEX（日本黒鉛工業社製）を油圧プレスで成形した。黒鉛材の成形密度は成形圧力によって制御した。得られた燃料電池用セバレータを抵抗率測定および耐食性試験により評価した。抵抗率測定は4探針法により印加電流 100 mA にて測定した。耐食性試験は、90℃飽和水蒸気雰囲気中でPH 2 に調整されたH₂SO₄水溶液を成形体表面に噴霧し 250 時間の耐久試験を行なった。耐久試験後、目視にて腐食が見られない場合を○で、腐食した場合を×で示した。結果を表1に示す。

【0033】

【表1】

20

30

表1	実施例										比較例			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	1	2	3	4
導電層														
導電層厚さ (nm)	-	-	-	-	-	-	10(Au)	5(Au)	10(Au)	50(ITO)	-	-	-	-
薄膜層厚さ (μm)	0.01	0.1	1	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0	5	0.01	0.01
黒鉛層														
厚さ (μm)	300	300	300	300	100	1000	300	300	300	300	300	300	300	50
密度 (g/cm ³)	1.9	1.9	1.9	1.7	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	-	-	-	1.9
特性														
抵抗率 (Ω·cm)	6.5×10 ⁻³	8.7×10 ⁻³	8.7×10 ⁻³	8.9×10 ⁻³	8.2×10 ⁻³	8.4×10 ⁻³	6.4×10 ⁻³	1.9×10 ⁻³	8.3×10 ⁻³	2.2×10 ⁻³	-	-	2.3×10 ⁻²	6.1×10 ⁻³
耐食性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	-	-	×	×
備考	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	接触せず	接触せず	腐食大	腐食

【0034】各実施例は、いずれも抵抗率が $1 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下と低く、また耐食性に優れていた。なお、実施例7は導電層を設けたが、その導電層が薄いため抵抗率は実施例1～6と同等であった。比較例1では、薄膜層がないため鉄板と黒鉛材とが接着しなかった。比較例2では、薄膜層が厚すぎたためセバレータに要求される $1 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の抵抗率が得られなかった。比較例3では、黒鉛層の成形密度が低すぎたため十分な耐食性能が得られなかった。比較例4では、黒鉛材が薄すぎたため十分な耐食性能が得られなかった。

【0035】実施例11

図3に示す金型を用いて、圧縮成形法により燃料電池用セバレータを作製した。セバレータ形状は、縦×横の長さが 100mm×100mm で、金属（鉄）板の厚さが0.3mm、溝深さが 0.7mm、溝底部における黒鉛材の厚さが 0.15

50

mm、全体の厚さが2mmである。得られた燃料電池用セバレータについて、抵抗率、耐食性を評価した結果、抵抗率は $6\sim 7\times 10^{-1}\Omega\cdot\text{cm}$ であり、また実施例1の条件で測定した耐食性も良好であった。この結果、ガス流路溝付きセバレータであっても圧縮成形で作製できた。

【0036】実施例12

図4に示す金型を用いて、圧縮成形法により燃料電池用セバレータを作製した。セバレータ形状は、縦×横の長さが100mm×100mmで、金属(鉄)板の厚さが0.2mm、溝深さが0.7mm、黒鉛材の厚さが0.3mm、全体の厚さが1.5mmである。得られた燃料電池用セバレータについて、抵抗率、耐食性を評価した結果、抵抗率は $6\sim 7\times 10^{-1}\Omega\cdot\text{cm}$ であり、また実施例1の条件で測定した耐食性も良好であった。金属板も同時に圧縮成形することで、より薄型のガス流路溝付きセバレータが得られた。

【0037】実施例13

膨張化黒鉛粉末(日本黒鉛工業社製: KEX、平均粒径 $16\mu\text{m}$)を金型に充填し、常温で100MPaの圧力で圧縮し、50mm角、3mm厚さの板材を3枚成形した。機械加工により図5に示した上、中、下の板のガス流路に相当する孔11aおよび13aと、ガス供給・排出穴に相当する孔12aをそれぞれ形成した。流路の幅wは3mmとした。この3枚の板を積層し、200MPaで圧着し、両面に異なったガス流路を有すると共に、それぞれにガスを供給、または排出するための孔を有した一体のセバレータを得た。

【0038】比較例5

膨張化黒鉛粉末を鱗片状黒鉛(ロンザ社製: KS44、平均粒径 $18\mu\text{m}$)に代える以外は実施例13と同様に成形した。金型から取出した成形品は脆く、セバレータの形状を維持できなかった。

【0039】比較例6

黒鉛の成形体(グラファイト・ブロック)を切削加工し、実施例13と同一の3枚の板を作製した。この3枚を積層し、200MPaで圧着したところ、一旦密着したように見えたものの、積層と直角方向の力を加えたら容易に層状剥離を起こし分離した。

【0040】

【発明の効果】本発明の燃料電池用セバレータは、金属材と黒鉛材との積層体からなり、この金属材と黒鉛材とが両者間を電氣的に導通して、かつ相互に密着させる薄膜層を介して積層されてなるので、機械的強度、耐食性および電気伝導性に優れる。また、機械的強度、ガス不透過性が高い金属材を用いることによって、黒鉛単独、樹脂単独系のセバレータに比較して薄型構造にできる。

【0041】また、燃料電池用セバレータは、薄膜層が金属材表面に形成された薄膜層であるので、金属材と黒鉛材との密着性に優れる。特に、薄膜層が樹脂層であるので、その樹脂層が溶媒に溶解するフッ素樹脂の層であるので、密着性により優れる。さらに薄膜層が樹脂層と導電層との複合層であるので、金属材と黒鉛材との密着性に優れるとともに、両者間の電気伝導性に優れる。

【0042】また、第1の黒鉛材と該黒鉛材を挟んで2枚の第2の黒鉛材を積層する3層の黒鉛材積層体からなる燃料電池用セバレータであって、第1および第2の黒鉛材が膨張化黒鉛材であり、上記2枚の第2の黒鉛材にガス流路が該黒鉛材をくり貫いて形成されてなるので、ガス流路となる溝を容易に、安価に形成することができる。また、原料に膨張化黒鉛を用いることにより、加熱することなく、加圧のみで成形および積層圧着が可能であり、セバレータの低コスト化が実現できる。

【0043】本発明の燃料電池用セバレータの製造方法は、薄膜層が形成された金属面に黒鉛粉末を圧縮成形するので、切削工程等の後加工も不要となり、製造工程を短縮でき製造性に優れる。

【0044】本発明の燃料電池は、上記セバレータを用いる固体高分子型燃料電池であるので、導電性、ガス不透過性、耐酸性、耐腐食性、機械的強度等に優れ、小型軽量で高性能な燃料電池となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池の構造概念を示す斜視図である。

【図2】燃料電池用セバレータの拡大断面図である。

【図3】金型の一例を示す図である。

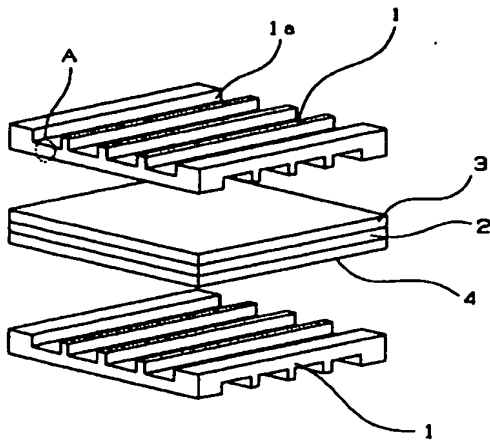
【図4】金型の他の例を示す図である。

【図5】燃料電池用セバレータの分解斜視図である。

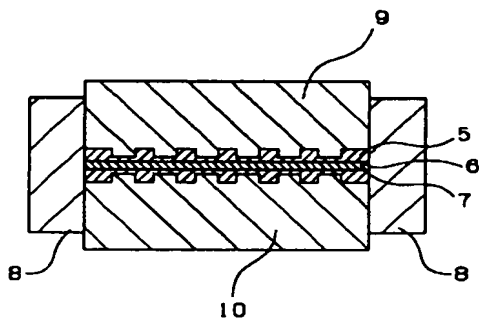
【符号の説明】

- 1 燃料電池用セバレータ
- 2 固体高分子電解質膜
- 3 アノード
- 4 カソード
- 5 黒鉛材
- 6 薄膜層
- 7 金属材
- 8 金型ダイ
- 9 上型
- 10 下型
- 11 上板
- 12 中板
- 13 下板

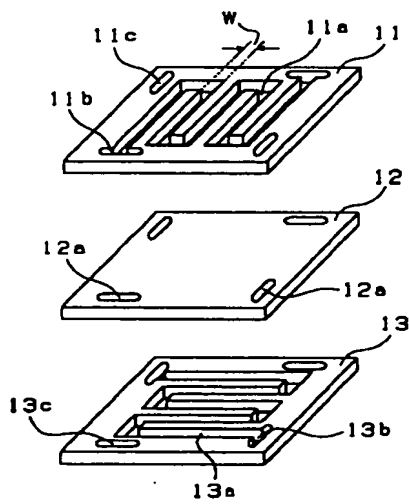
【図1】



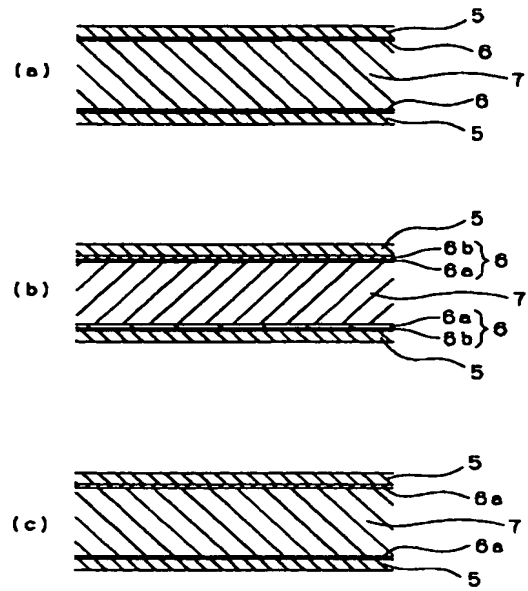
【図3】



【図5】



【図2】



【図4】

